

AS

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表平11-502052

(43) 公表日 平成11年(1999)2月16日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

H 01 M 8/12  
4/86  
4/88  
8/02

識別記号

F I

H 01 M 8/12  
4/86  
4/88  
8/02

T  
T  
B  
Y

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 22 頁)

(21) 出願番号 特願平8-527399  
 (36) (22) 出願日 平成8年(1996)3月18日  
 (35) 翻訳文提出日 平成9年(1997)9月10日  
 (36) 國際出願番号 PCT/GB96/00639  
 (37) 國際公開番号 WO96/28856  
 (38) 國際公開日 平成8年(1996)9月19日  
 (31) 優先権主張番号 9505301.3  
 (32) 優先日 1995年3月16日  
 (33) 優先権主張国 イギリス(GB)  
 (31) 優先権主張番号 9602284.3  
 (32) 優先日 1996年2月5日  
 (33) 優先権主張国 イギリス(GB)

(71) 出願人 ブリティッシュ ヌークリア フューエルズ ピーエルシー  
 イギリス国, チェシャー ダブリュエイ 3  
 6エイエス, ウォーリントン, リスレイ  
 (番地なし)  
 (72) 発明者 レヴィン, ロバート グリン  
 イギリス国, ブレストン ピーアール4  
 0エックスジェイ, サルヴィック, スプリングフィールズ・ワークス, ブリティッシュ ヌークリア フューエルズ ピーエルシー内 (番地なし)  
 (74) 代理人 弁理士 伊東 忠彦 (外1名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 特定の電極層を持つ固体酸化物燃料電池

(57) 【要約】

固体酸化物燃料電池(110)及び製造方法。電池(110)は電解質物質の層(112)とその異なる面の上に第一及び第二の電極(116, 120)を有する。該電極は混合導体であるセバレータ層(114, 118)により電解質から分離される。該燃料電池はスタック中で使用されうる。

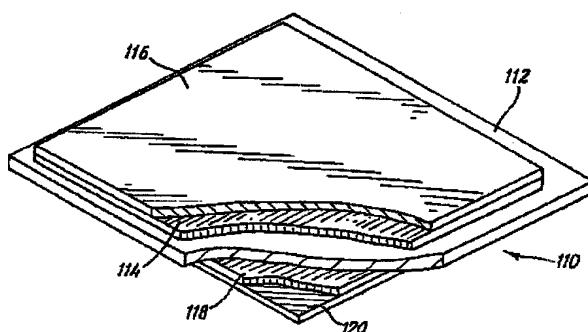


Fig.3

**【特許請求の範囲】**

1. 電解質物質の層と、少なくとも一方が該電解質物質と反応する該電解質物質の層の一方の面上の第一の電極物質の層及び該電解質物質の層の他方の面上の第二の電極物質の層と、該反応性電極物質を該電解質層から分離している混合導体からなるセパレータ層とからなる固体酸化物燃料電池。
2. セパレータ層は電極として作用し、その上に搭載された該電極層は電流コレクタとして作用する請求項1記載の固体酸化物燃料電池。
3. 該二つの電極層の物質は同じである請求項2記載の固体酸化物燃料電池。
4. 少なくとも一の電極はウラニアからなる請求項2又は請求項3記載の固体酸化物燃料電池。
5. ウラニアはイットリアとの固溶体として与えられる請求項4記載の固体酸化物燃料電池。
6. イットリアはウラニアとの混合酸化物の40モルパーセントから60モルパーセントまでを形成する請求項5記載の固体酸化物燃料電池。
7. 電流コレクタはペロブスカイト及び／又はコバルタイト酸化物を含む請求項2乃至請求項6の何れか記載の固体酸化物燃料電池。
8. 電流コレクタはランタン ストロンチウム コバルタイトを含むかまたはそれからなる請求項2乃至請求項7の何れか記載の固体酸化物燃料電池。
9. 電極層または各電極層の厚さは100ミクロンメートルより小さい請求項2乃至請求項8の何れか記載の固体酸化物燃料電池。
10. 電解質タイルの生成と該タイルへのウラニアからなる電極層の適用とかなる固体酸化物燃料電池の製造方法。
11. 電極層はウラニアとイットリアとバインド剤との懸濁液から形成される請求項10記載の方法。
12. 固溶体であるウラニア及びイットリアは懸濁液を形成するためにジルコニアと混合される請求項11記載の方法。
13. 電流収集層は一方若しくは両方の電極層の上に具備される請求項10乃

至請求項12の何れか記載の方法。

14. 電極層及び／又は電流収集層は電解質タイル上にスクリーン印刷される  
請求項13記載の方法。

15. 隣接するセルの電極物質は導電性物質により接続される、前記の請求項  
1から9のいずれか一に記載の、又は請求項10から14の何れか一の方法によ  
り製造された燃料電池のスタック。

16. 前記請求項の何れか記載の燃料電池の、又はそれにより生産された電流  
の使用。

## 【発明の詳細な説明】

### 特定の電極層を持つ固体酸化物燃料電池

本発明は燃料電池にかかり、特に固体酸化物燃料電池に関する。

燃料電池は反応体から得られた化学エネルギーを電気エネルギーに変換する電気化学素子である。従来、そのような素子の数多くの異なる系統が開発されてきた。これらはセル内で使用される電解質のタイプ及び通常の動作温度に従い異なっている。全ての素子は陽極若しくは負電極で燃料を消費し、陰極若しくは正電極で酸化剤を消費する。固体酸化物燃料電池は一般に知られ、緊密な電気的接触の中に陽極と陰極を具備する産業標準の電解質タイルからなる。

ほとんどの知られたS O F C sにおいて、電解質は陽極と陰極の間に含有され、スタック中の隣接セルの陽極と陰極は相互接続により、またはセル間の電気伝導を可能とするとともに反応体ガスが陽極と陰極に隣接する領域に分離して届けられることを可能にするバイポーラプレートにより接続される。反応体ガスは一般に酸化剤である空気により通常供給される酸素と、燃料である水素又は、例えばメタンのような炭化水素である水素含有化合物からなる。相互接続又はバイポーラプレート又はその一部は、電気化学過程を促進する電極表面への及び電極表面からの電子の輸送を可能とするために導電性であることと同様に、反応体ガスの分離を維持するためにガスを通さない必要がある。

しかし、これらの通常のS O F C sはそれらの多様な形態において、非経済的、高コスト若しくは非能率的であるという問題に直面する。これらの問題を解決し、そしてS O F C sの特性を改善する

ため、試みはなされてきた。効率は向上可能とされるが、これは約1000°Cまでの動作温度の上昇を含んでいた。かかる高温はセルと関連支持構造の構成に使用可能な物質の種類を限定する。高価な新種の物質が動作状態に耐えるために必要である。更に電池の動作寿命は低下される。

他の代替品は電解質の厚さを減少しようとするものであり、このことはセル抵抗を低下すると考えられているからである。しかし、薄い電解質は支持媒体を通して追加の強化を必要とするか又はセルは実用可能となるには脆すぎてしまう。

これは再びコストを増大させ、新種の物質が動作条件に耐えるために使用されることを必要とする。

本発明によれば、電解質物質の層と、少なくとも一方が該電解質物質と反応する該電解質物質の層の一方の面上の第一の電極物質の層及び該電解質物質の層の他方の面上の第二の電極物質の層と、該反応性電極物質を該電解質層から分離している混合導体からなるセパレータ層とからなる固体酸化物燃料電池が提供される。

本発明の記載における混合導体は、電子と酸素イオンの両方を少なくとも部分的に伝導する物質である。混合導体層は通常、電極物質のそれぞれと電解質物質の間に備えられる。そのような場合、その二層の混合導体物質は異なりうるが、好ましくは同一である。電解質から間隔を置かれた通常セルからの電極物質は、混合導体物質が備える電極機能（電極）を主に電流収集機能（電流コレクター）に提供することがわかった。

望ましくは、該セパレータ／電極物質は、隣接する電極／電流収集物質の表面に届けられるガスによる酸化若しくは還元の雰囲気中

で安定なセラミック酸化物物質である。電極／電流収集物質の両方に隣接して使用される同じ物質であるために、望ましくは、酸化雰囲気及び還元雰囲気の両方で安定である。

本発明にかかるSOFC内の使用に対して好ましいセパレータ／電極物質はウラニア、UO<sub>2</sub>である。好ましくは、前述の安定性を与えるためにウラニアは一若しくはそれ以上の別の酸化物でドープされる。ウラニアは例えば安定化剤としてイットリアでドープされ、好ましくは40モルパーセントから60モルパーセントのウラニアとの混合酸化物を形成する。

電極物質は混合酸化物の導電性の内層であることが好ましく、それはウラニアとジルコニアからなることが最も好ましい。最も好ましくは、ウラニアはイットリアとの固溶体として提供される。

導電性内層は以下の、イットリア安定化ジルコニア；タラ肝臓油；ポリビニルブチラル；ポリエチレングリコール；ジブチルフタレート；エタノール；テルピ

ネオールの一若しくはそれ以上から更になる懸濁液から生成される。

使用されるウラニアは天然又は天然のウラニアより少ないU235の含有量を持つ消耗されたウラニアからなる。

セパレータ／電極物質の層（または、一以上である場合はそれぞれの層）の厚さは、セパレータ／電極物質によって分離される電解質物質と電極／電流収集物質との間のイオン伝導が維持されるように、好ましくは100ミクロンメートル以下である。

電極物質は、イットリアのような安定化剤で付加的にドープされ

たZrO<sub>2</sub>によるイオン性の導電性マトリックスからなる。

電解質は電解質タイルとして提供される。それは、好ましくは3-12%のイットリアを含み、最も好ましくは約8%である、イットリア安定化ジルコニアから生産される。

代わりとして電解質は水性懸濁液を用いて生産されたタイルである。この水性懸濁液は以下のジルコニア、バインダー及び分散剤のうちから一若しくはそれ以上を含む。好ましくは一若しくはそれ以上のポリビニルアルコール（PVA）、ポリエチレングリコール及び分散剤が懸濁液中に付与される。適切に重量比で35%と60%の間のジルコニア、及び35%と60%の間のバインダー、5%までのPVAがある。懸濁液はまた、2%から8%の間のポリエチレングリコールと1%から5%の間の分散剤を含む。好ましくは、懸濁液は100gのジルコニア；100gの5%PVA水溶液；10gのポリエチレングリコールと5gの分散剤を含む。他の適当な電解質が使用されうる。

水素導入に隣接する陽極物質／（電流収集物質）電流コレクタは混合NiO/ZrO<sub>2</sub>系であって、最も好ましくはサーメットの形のものからなる。

酸素導入に隣接する陰極物質／電流コレクタは、例えばランタン、ストロンチウム及び鉄及び／又は酸化コバルトと同様の酸化マンガンからなる混合酸化物である、コバルタイト酸化物系から一般にはなる。

ランタン ストロンチウム コバルタイト（LSC）は、陰極電流コレクタのための特に好ましい電流収集／電極物質である。しか

し、電流コレクタはいずれかの適当な導電性の酸化物若しくはペロブスカイトである。

陰極は好ましくは、増大された電子及びイオンの伝導性を付与するドープされたランタン ストロンチウム コバルタイト電流コレクタを具備する。LSCは従来はジルコニア電解質とLSCが共存しないことから実現性はなかった。しかし、本発明に従うSOFC中のセパレータ／電極物質の使用は、適当に有効な電位化学変換及びイオン伝導の維持を有効に許容する一方、電解質物質とLSC物質の反応の回避を可能とする。驚くべきことに、ウラニアベースのセパレータ／電極物質により電解質物質から分離される陰極であるコバルタイトベースの電極／電流収集物質と一緒に使用されるZrO<sub>2</sub>ベースの電解質物質の利用で、従来技術の中で広く調べられたLa、Sr及びMn酸化物からなる低反応性のランタンベースの電極物質を有する同様のZrO<sub>2</sub>ベースの電解質物質を使用することによるより、電流密度出力はより大きくなりうる。

LSCは好ましくは印刷され、最も好ましくは電解質タイル上にスクリーン印刷される。

セパレータ／電極物質層は通常、本発明に従うSOFCの動作において（以下の記載に従う）電気化学過程で形成される有効なイオン伝導を達成するために伝導性部位の二次元配列を備える。

セパレータ／電極物質として使用されるウラニアはまた、電解質と、例えば以下に述べる実施例中で与えられる特異な物質である電極物質との間の熱膨張特性における良い適合を提供する。

本発明の第二の特徴によると：

電解質タイルの製造する段階と；

ウラニアからなる電極層をタイルに適用する段階とからなる燃料電池の製造方法が提供される。

本発明の第三の特徴によると：

電解質タイルの製造する段階と；

電極層をタイルに適用する段階と；

電流収集物質を電極に適用する段階とからなる燃料電池の製造方法が提供される。

好ましくは電極層はウラニアからなる。

第二及び第三の特徴に対する他の選択性は以下のものを含む。;

好ましくは、電極層及び電流収集物質は電解質の両側に適用される。

電解質タイルは好ましくはジルコニアの懸濁液から製造される。最も好ましくは懸濁液は水ベースのものである。懸濁液は好ましくはバインド剤及び分散剤と一体となる。バインド剤は好ましくはポリビニルアルコール及びポリエチレンリコールであるが、他の適当なバインド剤も使用されうる。分散剤は石鹼液が可能であるが、他の適当な分散剤も使用可能である。好ましくはジルコニアは5% PVAと混合され、その後通常は残りの物質がそこへ添加される。この混合物は好ましくは数日間ボール磨碎される。この混合物はそれから通常はスラブキャストされ大気温度で自然乾燥される。

電極層は好ましくはイットリア ウラニア ジルコニア懸濁液から形成される。電極層は好ましくはバインド剤及び溶剤を含み、こ

れらは好ましくはタラ肝臓油、ポリビニル；ポリエチレンリコール、ジブチルフタレート及びエタノールである。しかし、他の適当なバインド剤と溶剤の組み合わせも使用されうる。混合物は好ましくは21日間ボール磨碎され、そして望ましくはエタノールは少なくとも24時間の間に留去するようにされる。その段階で、好ましくはテルピネオールが添加されて混合物は攪拌される。UO<sub>2</sub>から分離しない安定なインクを提供することが重要である。

電流収集層は陽極用の標準ニッケル／ジルコニアサーメット及び陰極用のランタン ストロンチウム コバルタイト若しくはランタン ストロンチウム マンガナイト、又は他の適当な導電性の粉でありうる。電流収集層の形態は好ましくは標準的なスクリーン印刷インキである。これは陰極の場合好ましくは、ドープされたLSC、メタノール、ポリビニルピロリドンの懸濁液により生成される。この混合物は好ましくは13日間ボール磨碎され、その後メタノールが24時間の間に留去するようにされ、それからそこにテルピネオールが添加されて混合物

は攪拌される。陽極及び陰極電流コレクタは好ましくは電解質タイル上にスクリーン印刷される。

本発明の第四の特徴によれば、本発明の第一の特徴に従う燃料電池、又は本発明の第二若しくは第三の特徴に従って製造されたものの使用法が提供される。

本発明の第五の特徴によれば、前記の特徴に従う燃料電池の手段により電流の生成方法が提供される。

本発明の第六の特徴によれば、水性懸濁液から電解質タイルを製造する方法が提供される。

本発明の実施例は添付の図面に関する例として次に記載される。

そして、図1はSOFcの側面図である。

図2は図1に示されたものと同種のSOFcsの一系列表又はスタックの側面図である。

図3は本発明の第一実施例の部分分解された透視図である。

図4Aは従来の電池の特性を示すグラフである。

図4Bは本発明の実施例の特性を示すグラフである。

図1は基板電解質層3の上に他の層を堆積することにより形成されたSOFc1を示す。電解質層3のための適当な基板物質は公知の組成の焼結された $Y_2O_3$ 安定化ジルコニアのプレートリットである。電解質層3はそのそれぞれの面に堆積されたセパレータ層5, 7を有する。セパレータ層5, 7は酸化雰囲気での保護を提供するための安定化剤である40から60モルパーセントのイットリアを伴う混合酸化物中の消耗されたウラニアである。

セパレータ層5は例えば $NiO_2/ZrO_2$ から得られる陰極層9を支持する。セパレータ層7は、例えばLa, Sr, Fe及び/又はCoと同様のMnの酸化物を一般に含む公知のコバルタイト組成から形成された陰極層11を支持する。

図1に示されたSOFc1は公知の方法により組み立てられる。

例えば空気中の酸素は公知の方法により陰極層11に隣接する領

域に届けられ、その層を通じてセパレータ層7まで拡散する。酸素原子はセパレ

ータ層7中にある電子により還元される。この過程で形成された負の酸素イオンはセパレータ層7を通り、その後電解質層3を通ってセパレータ層5まで輸送される。水素（例えば、炭化水素からの再生により得られる）は公知の方法で陽極9に近接する領域まで届けられる。水素は陽極層9にあるNiOの導電性Niまでの還元を行う。水素はセパレータ層5と陽極層9の間の界面でイオン化される。層5表面で放出されたプロトンはセパレータ層7からの酸素イオンと再結合する。電気回路はそれぞれ陽極層9と陰極層11に接続される導体8, 10により完成され、セパレータ層7で還元過程を連続するための電子供給の提供が完了したとき、セパレータ層5で水素のイオン化により形成された電子は陽極層9と陰極層11を経て回路に沿って流れる。正味の効果は外部の回路を通る電流の流れを提供することである。

図2中に示されるように、SOFCsのスタックは、SOFC1と同一のさらなるSOFCs1a, 1bと電気的に直列に接続された図1（図2では輪郭のみが示される）のSOFC1からなる。SOFCs1と1aとの間の内部接続は内部接続物質13により形成され、SOFCs1と1bとの間の内部接続は内部接続物質15により形成される。物質13と物質15は同一である。物質13と15は公知のバイポーラプレート物質または、代わりとして、例えばNi合金の泡からなり、バリア層により分離された反応体ガスO<sub>2</sub>及びH<sub>2</sub>がそれを通って簡単に届けられうる導電性の泡又は多孔性の物質の層からなる。出力電流は、それぞれSOFCs1aの陽極層とSOFCs1bの陰極層に接続される導体17, 19を経て外部の回路中で取り出される。

図1に示されたSOFCsの直列のスタックによって得られる出

力電圧は、各SOFCにより提供される電圧にSOFCsの数を乗じられたものに等しい。従って、スタックの出力はスタック中のSOFCsの存在数増加によって増大されうる。

図3中に示されるセル110は混合酸化物電極114を支持する電解質タイル112からなる。電極114はタイル112と電気的に接続している。電極114上に搭載されるのは陽極電流収集層116である。この層116はまた電極1

14と電気的に接続している。

タイルの反対側には別の混合酸化物電極118がその上に搭載された陰極電流収集層120とともに具備される。

電解質タイルは初めに、スラブキャストにより望みの形と厚さとなるように製造される。タイル112は、100gのジルコニアと：100gの5%のポリビニルアルコール(185,000までのMW)水溶液と：10gのポリエチレングリコール(1,500までのMW)と：5gの分散剤とからなる水性の懸濁液からキャストされる。実験室スタイルの石鹼液は適当な分散剤を提供するか、他のものも使用可能であった。

懸濁液はジルコニアとポリビニルアルコールをその後添加される他の物質と一緒に混合することにより作られる。混合物はその後数日間ボール磨碎される。

懸濁液はキャスト中に置かれ、大気温度で自然に乾燥するようにされ、その後1550°Cより高くない温度で焼結される。そして製造されたタイル112はその後次の製造段階で使用される。

PVA以外の別のバインダーも使用されうる。同様に別の希土酸化物物質でドープされたジルコニアを含む別の電解質ベース物質が使用されうる。有機溶剤は従来のタイル製造において使用される。

混合酸化物電極114は安定なインク懸濁液から製造される。懸濁液は17.19gの50mol%イットリアUO<sub>2</sub>固溶体と、13.65gのジルコニアと、0.81gのタラ肝臓油と、4.5gのポリビニルブチラルと、1.33gのポリエチレングリコールと、1.2gのジブチルフタレートと、36gのエタノールとをボールミル中で21日間混合することにより製造された。エタノールはその後24時間の間に懸濁液から留去するようにされる。20gのテルピネオールがその後添加されて中で攪拌される。

得られた懸濁液は前もって作られたタイル112上に望みの厚さでスクリーン印刷される。混合酸化物電極層114は大気温度での乾燥がなされ、その工程はタイル112の別の面に対して繰り返される。混合酸化物層114はその後1550°Cより高くない温度で焼結される。

電極層114, 118は酸化及び還元条件下でのその安定性によって重大な利点を提供する。その熱膨張係数はまた、使用が望ましい8mo1%イットリアのジルコニアタイルのそれと適合する。電極層114, 118はまた、望みの部位に電子と酸素イオンを伝導するその能力によって有用である。

本実施例中で使用される電流コレクタ層120はランタン ストロンチウム コバルタイトである。この物質はペロブスカイトであり、タイルの面上で第一の電流コレクタとして作用する多少の酸素イオン伝導性を持つ電気伝導性の酸化物である。

ランタン ストロンチウム マンガナイトを含む別のペロブスカイトが使用されうる。ランタン ストロンチウム コバルタイトは優れた電子及びイオン伝導性の物質である。それは、内層の良好な導入のために本系の中で使用されるのみである。ランタン ストロンチウム コバルタイトはそれがジルコニア層と共存しえないために従来は使用されなかつた。

ランタン ストロンチウム コバルタイトは30gのドープされたランタン ストロンチムを30gのメタノール及び1.59gのポリビニルピロリドン中に分散することによるインクとして製造される。その物質はボールミルを使用して13日間混合される。混合に続き、メタノールは24時間の間に留去するようされ、その後10gのテルピネオールが添加されて中で攪拌される。陰極電流コレクタ層120は混合酸化物層の上に望みの厚さでスクリーン印刷により適用され、1550°Cより高くない温度で焼結される。

陽極電流コレクタ層116は、前に陽極として燃料電池中で使用された通常のニッケル／ジルコニアサーメットから形成される。

この層116が電極としてよりむしろ第一の電流導体として作用することにより、金属若しくは合金の粉の系でのその置き換えは可能である。

図4Aは、電流密度に対する電圧の観点から、典型的な従来のタイル系の性能を示す。認識可能なように性能は1000°C以下でかなり低下している。

しかし、図4Bは本発明にかかる電池は全域にわたって均一に改

善された性能を持つことをはっきりと示す。発明の物質の725°Cでの性能は従来技術の905°Cでの性能とまさに匹敵する。

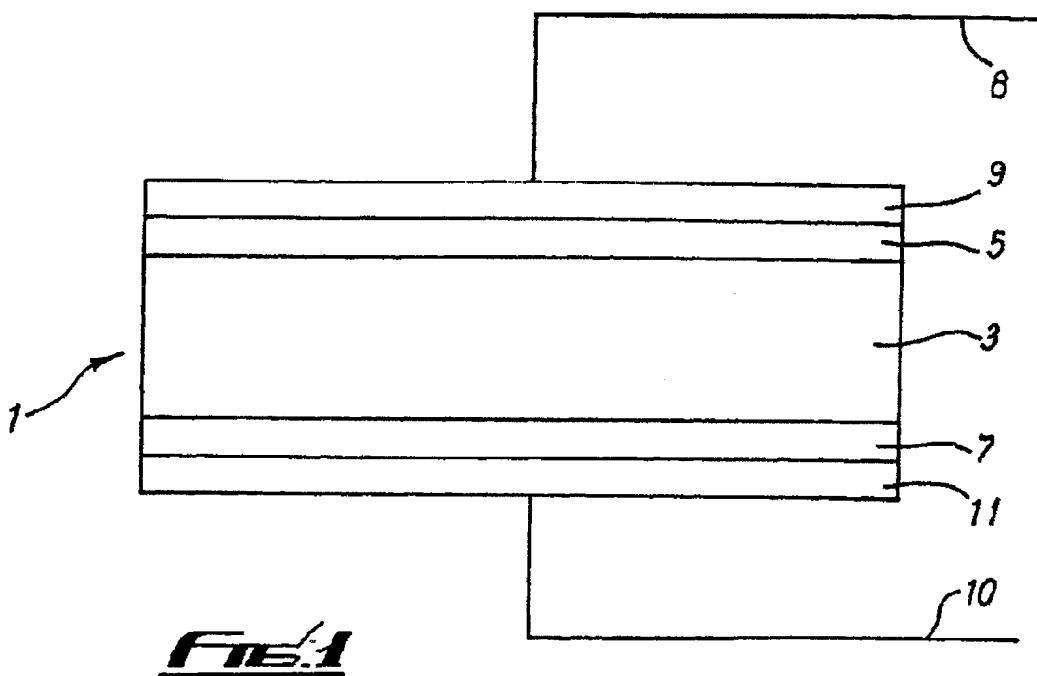
新規な電池構造の改善された特性はまた、活性化エネルギーにおいて反映される。従来電池は新規な電池の53kJ/molに対して80kJ/molの活性化エネルギーを示す。この改善は、より低い温度での性能を強化するという意味で、実施上の利点となる。

得られた利点は二つの効果から生ずると解される。全体の性能は電池の陽極の有効面積の増大により改善されると解される。反応部位を提供するためのジルコニア／ニッケル／ガスの三重点への依存は除外される。混合導電性表面上のいずれかの地点は電気化学的な反応が起こるための必要な条件を提供する。減少した活性化エネルギーは本発明にかかる電池において律速過程が従来技術と異なることを示す。これは表面現象と関連する。利点に対して示された仮説は限定が意図されるものではなく、単に、いかにして明確な利点を生じえるのかに関する提案である。

伝統的なNi／ジルコニアサーメットの再焼結及び有害な効果は、電極がウラニアであるために回避されうる。

本発明により製造されたタイルはスタック又はこの分野で良く知られた他のシステム配列中に配置されうる。

【図1】



【図2】

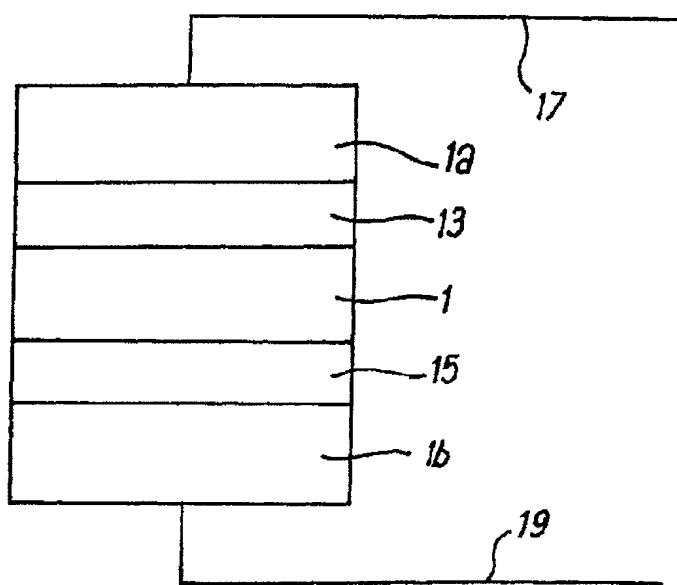


FIG.2

【図3】

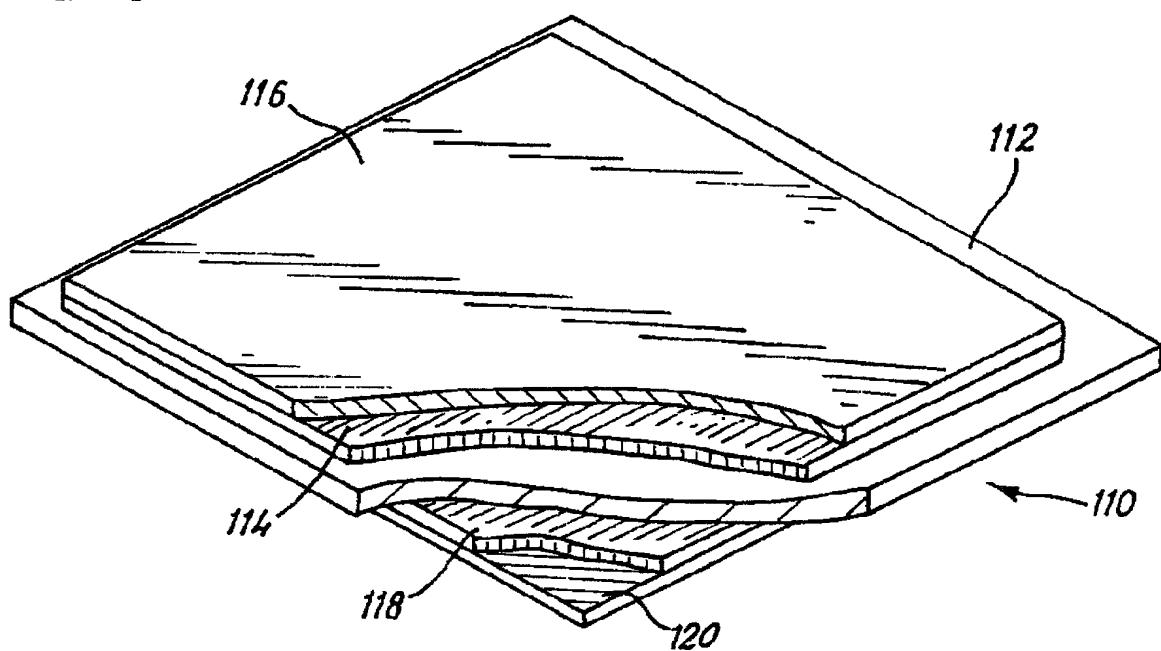
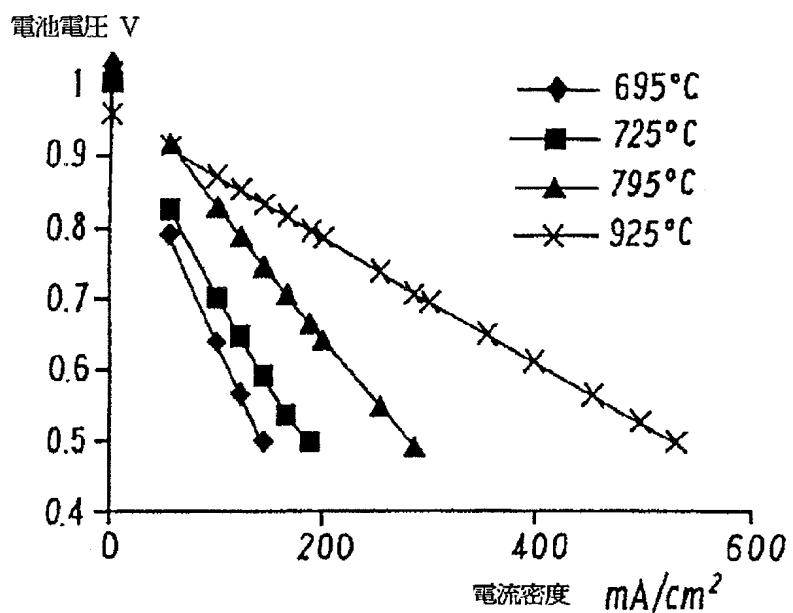
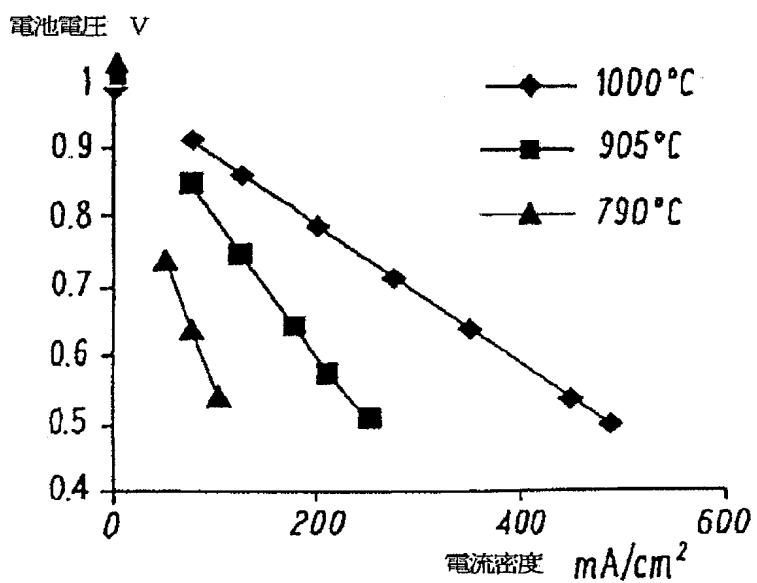


FIG. 3

【図4】

Fig.4 AFig.4 B

【手続補正書】特許法第184条の8第1項

【提出日】1997年4月17日

【補正内容】

特許請求の範囲

1. 電解質物質の層と、該電解質物質の層の一方の面への第一の電極物質の層と、該電解質物質の層の他方の面への第二の電極物質の層と、少なくとも一の電極物質を該電解質層から分離する混合導体からなるセパレータ層とからなる固体酸化物燃料電池であって、該混合導体はイットリアとの二成分固溶体であるウラニアからなることを特徴とする固体酸化物燃料電池。
2. 一若しくはそれ以上のセパレータ層はさらに分離したジルコニアからなる請求項1記載の燃料電池。
3. セパレータ層は両方の電極物質を該電解質物質から分離する請求項1又は2記載の燃料電池。
4. 該二つの電極層の物質は同じものである請求項2記載の燃料電池。
5. 一又は複数の該セパレータ層はそれらがある該燃料電池の面の上で主要な電極機能を備え、その上に設けられた該電極物質層は主要な電流収集機能を備える請求項1乃至3の何れか記載の燃料電池。
6. イットリアは40mol%から60mol%のウラニアとの固溶体を形成する請求項1乃至5の何れか記載の燃料電池。
7. 電流コレクタ／電極物質はペロブスカイト及び／又は混合酸化ニッケル／ジルコニア系及び／又はランタン ストロンチウム マンガナイトを含む請求項1乃至6の何れか記載の燃料電池。
  
8. 電流コレクタ／電極物質は、ランタン ストロンチウム コバルタイトを含み又はそれからなり、該セパレータ層はこの電流コレクタ／電極物質をそれが反応する該電解質層から分離する請求項1乃至7の何れか記載の燃料電池。
9. 該セパレータ層／電極層又は下にある複数のセパレータ層／電極層のそれぞれの厚さは100μm(ミクロン)より小さい請求項1乃至8の何れか記載の燃料電池。

10. 電解質タイルを生成し、セパレータ層／電極層を該タイルに、そして電流コレクタ／電極物質層をイットリウムとの二成分固溶体であるウラニアからなる該セパレータ層／電極層に適用することよりなる固体酸化物燃料電池の製造方法。

11. 該電極層はウラニアとイットリアとバインド剤との懸濁液から形成される請求項10記載の方法。

12. 固溶体であるウラニア及びイットリアは懸濁液を形成するために微粒子ジルコニアと混合される請求項11記載の方法。

13. 電流収集層は一方若しくは両方の電極層に具備される請求項10乃至請求項12の何れか記載の方法。

14. 電極層及び／又は電流収集層は電解質タイル上にスクリーン印刷される請求項13記載の方法。

15. 隣接するセルの電極物質は導電性物質により接続される、前記の請求項1から9のいずれか一に記載の、又は請求項10から14の何れか一の方法により製造された燃料電池のスタック。

16. 請求項1から9のいずれか一に記載の燃料電池を組み込み、及び／又は請求項10から14の何れか一の方法に従い製造された燃料電池を組み込み、及び／又は請求項15記載の燃料電池のスタックにより作成される電流を生成する方法。

17. 水性懸濁液から電解質タイルを生成することよりなる固体酸化物燃料電池用電解質タイルの形成方法。

## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/GB 96/00639

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> IPC 6 H01MB/12		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbol) IPC 6 H01M		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO,A,93 02481 (MERCK PATENT GMBH) 4 February 1993 see page 5, paragraph 2; claims 1,2,4,5 see page 6, paragraph 3 - page 7, paragraph 1 see page 8, line 27 - line 31	1-3,7,9, 16
Y	---	5,6,15
Y	WO,A,93 26055 (BRITISH NUCLEAR FUELS PLC ;LEWIN ROBERT GLYN (GB); WOOD GEOFFREY O) 23 December 1993 see claims 1-5,9,11; figure 1 ---	5,6,15
X	US,A,4 052 532 (TANNENBERGER HELMUT ET AL) 4 October 1977 see claims 1,2; examples 2,3	1,2,4,5, 7,9-13, 16
Y	---	14
-/-		
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C.		<input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.
<p>* Special categories of cited documents :</p> <p>'A' document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>'E' earlier document but published on or after the international filing date</p> <p>'L' document which may throw doubt on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>'O' document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>'P' document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> <p>"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.</p> <p>"Z" document members of the same patent family</p>		
Date of the actual completion of the international search  3 July 1996	Date of mailing of the international search report  22.07.96	
Name and mailing address of the ISA  European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax (+31-70) 340-3016	Authorized officer  D'hondt, J	

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inte  
onal Application No  
PCT/GB 96/00639

C(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US,A,4 142 024 (VAN DEN BERGHE PAUL ET AL) 27 February 1979 see column 4, line 1 - line 8; claims 1,2 see column 4, line 28 - line 53; figure 1 ---	1,2,4,5, 9-13,16
X	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 017, no. 375 (E-1397), 14 July 1993 & JP,A,05 062688 (MURATA MFG CO LTD), 12 March 1993, see abstract	1,2,7,8, 16
Y	---	14
X	DE,A,39 22 673 (SIEMENS AG) 24 January 1991 see column 6, line 57 - column 7, line 21; claim 1	1,2,7,8, 11,15,16
Y	---	14
X	JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY, vol. 139, no. 10, 1 October 1992, pages L89-L91, XP000358985 WANG L S ET AL: "LOWERING THE AIR-ELECTRODE INTERFACIAL RESISTANCE IN MEDIUM-TEMPERATURE SOLID OXIDE FUEL CELLS" see abstract	1,2,7,8, 16
X	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 016, no. 582 (E-1300), 22 December 1992 & JP,A,04 230955 (TONEN CORP;OTHERS: 01), 19 August 1992. see abstract	1,2,15
A	EP,A,0 253 459 (WESTINGHOUSE ELECTRIC CORP) 20 January 1988 see claims 1,11-13 -----	6

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No  
PCT/GB 96/00639

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date
WO-A-9302481	04-02-93	DE-A-	4123694	21-01-93
-----				
WO-A-9326055	23-12-93	AU-B-	662990	21-09-95
		AU-B-	4342193	04-01-94
		CA-A-	2115068	23-12-93
		EP-A-	0606424	20-07-94
		JP-T-	6510630	24-11-94
		NO-A-	940380	05-04-94
		US-A-	5508127	16-04-96
-----				
US-A-4052532	04-10-77	CH-A-	594292	13-01-78
		BE-A-	835636	17-05-76
		DE-A-	2551936	20-05-76
		FR-A,B	2292342	18-06-76
		GB-A-	1500558	08-02-78
		JP-A-	51074243	28-06-76
		NL-A-	7513515	21-05-76
-----				
US-A-4142024	27-02-79	CH-A-	608310	29-12-78
		DE-A-	2723872	08-12-77
		FR-A,B	2353143	23-12-77
		GB-A-	1522787	31-08-78
		JP-A-	53010836	31-01-78
		NL-A-	7705643	30-11-77
-----				
DE-A-3922673	24-01-91	NONE		
-----				
EP-A-0253459	20-01-88	US-A-	4702971	27-10-87
		CA-A-	1291788	05-11-91
		DE-A-	3785794	17-06-93
		JP-A-	62281271	07-12-87
		US-A-	4812329	14-03-89
-----				

---

フロントページの続き

(81) 指定国 EP(AT, BE, CH, DE,  
DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, L  
U, MC, NL, PT, SE), AU, CA, CN, J  
P, KR, NO, NZ, US

(72) 発明者 パーネット, スティーヴン ヴァーノン  
イギリス国, ブリストン ピーアール4  
Oエックスジェイ, サルウィック, スプリ  
ングフィールズ・ワークス, ブリティッシ  
ュ ヌークリア フューエルズ ピーエル  
シー内 (番地なし)

(72) 発明者 ウッド, ジェフリー アラン  
イギリス国, ブリストン ピーアール4  
Oエックスジェイ, サルウィック, スプリ  
ングフィールズ・ワークス, ブリティッシ  
ュ ヌークリア フューエルズ ピーエル  
シー内 (番地なし)